

Deutsches Patent- und Markenamt

München, den 19. November 2002

Telefon: (0 89) 21 95 - 3002

Aktenzeichen: 101 42 093.5-24

Anmelder:

Yazaki Corp.

Deutsches Patent- und Markenamt · 80297 München

Harwardt Neumann
Patent- und Rechtsanwälte
Postfach 1455

53704 Siegburg

Ihr Zeichen: Q01425DE10

Bitte Aktenzeichen und Anmelder bei
allen Eingaben und Zahlungen angeben

Zutreffendes ist angekreuzt ☒ und/oder ausgefüllt

Prüfungsantrag, Einzahlungstag am 13. September 2001

Eingabe vom

eingegangen am

Die Prüfung der oben genannten Patentanmeldung hat zu dem nachstehenden Ergebnis geführt.

Zur Äußerung wird eine Frist von

4 Monat(en)

gewährt, die mit der Zustellung beginnt.

Für Unterlagen, die der Äußerung gegebenenfalls beigelegt werden (z.B. Beschreibung, Beschreibungsteile, Patentansprüche, Zeichnungen), sind je zwei Ausfertigungen auf gesonderten Blättern erforderlich. Die Äußerung selbst wird nur in einfacher Ausfertigung benötigt.

Werden die Beschreibung, die Patentansprüche oder die Zeichnungen im Laufe des Verfahrens geändert, so hat der Anmelder, sofern die Änderungen nicht vom Deutschen Patent- und Markenamt vorgeschlagen sind, im Einzelnen anzugeben, an welcher Stelle die in den neuen Unterlagen beschriebenen Erfindungsmerkmale in den ursprünglichen Unterlagen offenbart sind.

Mr

Hinweis auf die Möglichkeit der Gebrauchsmusterabzweigung

Der Anmelder einer mit Wirkung für die Bundesrepublik Deutschland eingereichten Patentanmeldung kann eine Gebrauchsmusteranmeldung, die den gleichen Gegenstand betrifft, einreichen und gleichzeitig den Anmeldetag der früheren Patentanmeldung in Anspruch nehmen. Diese Abzweigung (§ 5 Gebrauchsmustergesetz) ist bis zum Ablauf von 2 Monaten nach dem Ende des Monats möglich, in dem die Patentanmeldung durch rechtskräftige Zurückweisung, freiwillige Rücknahme oder Rücknahmefiktion erledigt, ein Einspruchsverfahren abgeschlossen oder - im Falle der Erteilung des Patents - die Frist für die Beschwerde gegen den Erteilungsbeschluss fruchtlos verstrichen ist. Ausführliche Informationen über die Erfordernisse einer Gebrauchsmusteranmeldung, einschließlich der Abzweigung, enthält das Merkblatt für Gebrauchsmusteranmelder (G 6181), welches kostenlos beim Patent- und Markenamt und den Patentinformationszentren erhältlich ist.

**Annahmestelle und
Nachbriefkasten
nur
Zweibrückenstraße 12**

Hauptgebäude
Zweibrückenstraße 12
Zweibrückenstraße 5-7 (Breiterhof)
Markenabteilungen:
Cincinnatistraße 64
81534 München

Hausadresse (für Fracht)
Deutsches Patent- und Markenamt
Zweibrückenstraße 12
80331 München

Telefon (089) 2195-0
Telefax (089) 2195-2221
Internet: <http://www.dpma.de>

Bank:
Landeszentralbank München
Kto.Nr.: 700 010 54
BLZ: 700 000 00

P 2401.1
4.02

S-Bahnanschluss im
Münchner Verkehrs- und
Tarifverbund (MVG):



Zweibrückenstr. 12 (Hauptgebäude)
Zweibrückenstr. 5-7 (Breiterhof)
S1 - S8 Haltestelle Isartor

Cincinnatistraße:
S2 Haltestelle Fasangarten
Bus 98 / 99 (ab S-Bahnhof Giesing) Haltestelle Cincinnatistraße

- (1) US 4 082 864
(2) DE 43 03 434 C1

Durch (1) sind bereits ein Verfahren und eine Vorrichtung zur Infiltration eines strangförmigen Materials mit geschmolzenem Metall bekannt, die übereinstimmend mit den Gegenständen der Patentansprüche 1 und 5 folgende Merkmale aufweisen (vgl. Spalte 2, Zeile 43 bis Spalte 4, Zeile 11 und Zeichnung):

- Das als Fasern bezeichnete strangförmige Material wird vor der Infiltration mit geschmolzenem Metall mit einem als Boride bezeichneten Flussmittel beschichtet, um die Benetzbarkeit zu verbessern.
- Die Infiltrationsvorrichtung umfasst einen Badbehälter 32 für das geschmolzene Metall 34, der einen als Rohr 28 bezeichneten Einlassdichtabschnitt aufweist, und eine als Ofenzone 14 bezeichnete Flussmittelbeschichtungseinrichtung für das strangförmige Material 26.

Damit sind die Gegenstände der Patentansprüche 1 und 5 nicht mehr neu.

Der Gegenstand des Patentanspruches 2 beruht nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit, weil das Infiltrationsverfahren gemäß (1) auch schon die Verfahrensschritte

- kontinuierliches Einführen des strangförmigen Materials durch einen Einlassdichtabschnitt in einen Badbehälter, der das geschmolzene Metall enthält,
- Herausziehen des strangförmigen Materials aus dem Badbehälter und
- Beschichten des strangförmigen Materials mit Flussmittel in einer Flussmittelbeschichtungseinrichtung, die nahe dem Badbehälter mit Einlassrohr 28 angeordnet ist,

umfasst (vgl. Spalte 2, Zeile 43 bis Spalte 4, Zeile 11 und Zeichnung). Dort ist zwar abweichend vom Gegenstand des Patentanspruches 2 nicht vorgesehen, dass der Innenraum des Badbehälters unter Druck steht.

Dass aber bei einem Infiltrationsverfahren zur Herstellung von Metall-Matrix-Verbundwerkstoffen, in die Verstärkungsmaterialien eingebettet sind, die Metallschmelze mit Druck beaufschlagt wird, liegt nahe, weil es aus (2) bekannt ist und dort auf dem einschlägigen Fachgebiet zum gleichen Zweck vorgesehen ist (vgl. Spalte 4, Zeile 48 bis Spalte 5, Zeile 10).

Die Patentansprüche 1, 2 und 5 sind daher nicht gewährbar.

Ein der Patentfähigkeit der Gegenstände der Patentansprüche 3 und 4 entgegenstehender Stand der Technik konnte bisher nicht ermittelt werden. Der Anmelderin wird anheim gestellt, einen hierauf gerichteten beschränkten Hauptanspruch und eine angepasste Beschreibung einzureichen.

Mit den vorliegenden Unterlagen ist die Erteilung des Patents nicht möglich.

Prüfungsstelle für Klasse C 22 C

Lange, HR: 4623

Lange

Anlagen: Abl. von 2 Entgegenhaltungen 2-fach



DEUTSCHES
PATENTAMT

⑳ Aktenzeichen: P 43 03 434.9-24
㉑ Anmeldetag: 5. 2. 93
㉒ Offenlegungstag: —
㉓ Veröffentlichungstag
der Patenterteilung: 18. 8. 94

Innerhalb von 3 Monaten nach Veröffentlichung der Erteilung kann Einspruch erhoben werden.

㉔ Patentinhaber:
Austria Metall AG, Braunau, AT

㉕ Vertreter:
Wilhelms, R., Dipl.-Chem. Dr.rer.nat.; Kilian, H.,
Dipl.-Phys. Dr.rer.nat.; Pohlmann, E., Dipl.-Phys.,
Pat.-Anwälte, 81541 München

㉖ Erfinder:
Schmitt, Theodore, Wien, AT; Neuwirth, Egon,
Braunau, AT

㉗ Für die Beurteilung der Patentfähigkeit
in Betracht gezogene Druckschriften:
US 35 47 180

㉘ Verfahren zum Herstellen von Metall-Matrix-Verbundwerkstoffen

㉙ Verfahren zum Herstellen von Metall-Matrix Verbundwerkstoffen aus einer Metall-Matrix, in die Verstärkungsmaterialien eingebettet sind. Die Verstärkungsmaterialien werden in eine Vorform gebracht, die in einem Tiegel angeordnet wird. Über der Formöffnung wird das Metallmaterial angeordnet, das die Metall-Matrix bilden soll. Der Tiegel mit der Vorform und dem Metallmaterial wird in einem Vakuumofen evakuiert und bis zum Schmelzen des Metallmaterials erwärmt. Der Tiegel wird anschließend aus dem Vakuumofen herausgenommen und in einem Druckgefäß angeordnet und darin mit Druck beaufschlagt, so daß das Metallmaterial die Vorform infiltriert. Der infiltrierte Körper wird anschließend abgekühlt und aus dem Druckgefäß entnommen.

DE 43 03 434 C 1

DE 43 03 434 C 1

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Herstellen von Metall-Matrix-Verbundwerkstoffen aus einer Metall-Matrix, in die Verstärkungsmaterialien eingebettet sind, bei dem die Verstärkungsmaterialien in eine Vorform gebracht werden, die Vorform in einem Tiegel angeordnet wird und im Bereich der Formöffnung das Metallmaterial angeordnet wird, das die Metall-Matrix bilden soll, und der Tiegel mit der Vorform und dem Metallmaterial evakuiert, bis zum Schmelzen des Metallmaterials erwärmt, mit Druck beaufschlagt und anschließend abgekühlt wird.

Ein derartiges Verfahren ist aus der US-PS 3 547 180 bekannt.

Metall-Matrix-Verbundwerkstoffe werden im allgemeinen dadurch hergestellt, daß ein Verstärkungsmaterial mit Hilfe eines Vorformhalters durch Wickeln oder Legen in die gewünschte Form gebracht wird. Das in dieser Weise angeordnete Verstärkungsmaterial bildet die durch das Metall zu infiltrierende Vorform. Das Metallmaterial, das die Vorform infiltrieren soll, das heißt der sogenannte Speiser, wird im Bereich der Formöffnung angeordnet. Anschließend wird die gesamte Anordnung evakuiert und bis zum Schmelzen des Metallmaterials erwärmt. Sobald das Metallmaterial geschmolzen ist, bildet es einen gasdichten Abschluß zur Vorform. Von außen wird ein Gasdruck aufgebaut, der das aufgeschmolzene Metallmaterial in die Vorform drückt, so daß die evakuierten Hohlräume zwischen den Verstärkungsmaterialteilen ausgefüllt werden. Wegen der Nichtbenetzbarkeit oder der schlechten Benetzbarkeit der Verstärkungsmaterialien durch das Metallmaterial ist zum Ausfüllen dieser Zwischenräume ein Vielfaches des Atmosphärendruckes notwendig. Um unerwünschte chemische Reaktionen zwischen dem Metallmaterial und dem Verstärkungsmaterial zu vermeiden, muß die Anordnung anschließend sehr schnell abgekühlt werden, was insbesondere bei der Verwendung von Kohlenstoffasern als Verstärkungsmaterialien von Bedeutung ist. Derartige unerwünschte chemische Reaktionen können die Verstärkungsmaterialien beispielsweise die Fasern schwächen und andererseits in der Metall-Matrix Einlagerungen bilden, die die Eigenschaften der Matrix verschlechtern. Darunter sind insbesondere Sprödigkeiten, Festigkeitsverluste und Ribbildungen zu verstehen.

Eine weitere Schwierigkeit bei der Herstellung von Metall-Matrix-Verbundwerkstoffen besteht darin, daß Gaseinschlüsse außerordentlich störend sind und wesentlich schwerer als bei üblichen Gießverfahren zu vermeiden sind.

Bei dem eingangs genannten Verfahren, das aus der US-PS 3 547 180 bekannt ist, wird eine aus nur einer Baueinheit bestehende Vorrichtung dazu benutzt, die Anordnung aus Metallmaterial und Verstärkungsmaterial zu evakuieren, zu erwärmen, mit Druck zu beaufschlagen und anschließend abzukühlen. In ihrem Grundaufbau besteht diese Baueinheit im Inneren aus einem dickwandigen Gefäß, das einerseits vakuumdicht und andererseits druckfest ist und in der die Vorform und das Metallmaterial zum Infiltrieren der Vorform angeordnet werden.

Die bei dem bekannten Verfahren benutzte Vorrichtung, d. h. insbesondere das Infiltrationsgefäß, muß bei einer erhöhten Temperatur von bis zu 800°C vakuum- und druckbeständig sein. Da es auch beheizbar und schnell abkühlbar sein muß, muß es zwei einander wi-

dersprechenden Anforderungen genügen.

Das hat zur Folge, daß das Infiltrationsgefäß eine hohe Festigkeit haben muß und in seiner Ausführung mit dementsprechend hohen Kosten verbunden ist. Je größer der herzustellende Körper des Verbundwerkstoffes ist, um so höher werden diese Kosten, was zur Folge hat, daß Bauteile mit großen Abmessungen überproportional hohe Kosten verursachen.

Nach dem Druckaufbau und nach dem Infiltrieren der Vorform durch das Metallmaterial muß zur Vermeidung der eingangs genannten chemischen Reaktionen eine möglichst schnelle Abkühlung erzielt werden. Diese ist um so schwieriger, je größer die Vorform ist, wobei erschwerend hinzukommt, daß nicht nur der infiltrierte Körper, sondern die gesamte Inneneinrichtung des Infiltrationsgefäßes Wärme gespeichert hat, die gleichfalls abgeführt werden muß. Dadurch erhöht sich der Aufwand für das Kühlsystem.

Die der Erfindung zugrunde liegende Aufgabe besteht demgegenüber darin, das Verfahren der eingangs genannten Art so auszubilden, daß die Kosten der zu seiner Durchführung erforderlichen Vorrichtung verringert sind.

Mit dem erfindungsgemäßen Verfahren soll es insbesondere möglich sein, den infiltrierte Körper schneller abzukühlen und dadurch chemische Wechselwirkungen zwischen dem Verstärkungsmaterial und dem aufgeschmolzenen Metallmaterial insbesondere zwischen einem Fasermaterial und schmelzflüssigem Aluminium zu verringern.

Diese Aufgabe wird gemäß der Erfindung durch die Verfahrensschritte gelöst, die im Kennzeichen des Patentanspruchs 1 angegeben sind.

Der Grundgedanke der erfindungsgemäßen Ausbildung besteht somit darin, im Gegensatz zu dem bekannten Verfahren nicht eine einzige Baueinheit als Infiltrationsgefäß zu verwenden, sondern zwei verschiedene Gefäße, nämlich einen Vakuumofen und ein Druckgefäß vorzusehen, die zusammen mit geringeren Kosten als das aufwendige Infiltrationsgefäß verbunden sind, das bei dem bekannten Verfahren verwandt wird.

Im ersten Gefäß, d. h. im Vakuumofen, wird die Anordnung aus Metallmaterial und Vorform evakuiert und bis zum Schmelzen des Metallmaterials erwärmt. Sobald diese Vorgänge abgeschlossen sind, wird der Tiegel samt Inhalt in das zweite Gefäß, d. h. das Druckgefäß, gegeben. Im Druckgefäß wird ein Druck aufgebaut, der ausreicht, um das Verstärkungsmaterial der Vorform zu infiltrieren, woraufhin das Druckgefäß, der Tiegel und die infiltrierte Vorform schnell abgekühlt werden.

Da während der Zeit zwischen dem Öffnen des Vakuumofens und dem Druckaufbau im Druckgefäß der normale Luftdruck, d. h. der Atmosphärendruck, die Metallschmelze auf die Vorform drückt, sollte die Ausbildung von Tiegel, Vorformhalter, Schmelz- und Vorform so sein, daß die Vorform durch die durch den Atmosphärendruck beaufschlagte Metallschmelze gasdicht abgeschlossen ist, damit keine Luft in die evakuierte Vorform eindringt. Der Atmosphärendruck sollte aber nicht ausreichen, die Metallschmelze in die Vorform hineinzudrücken, sie sollte die Vorform nur an der Oberfläche berühren. Würde die Vorform schon durch das Wirken des Atmosphärendruckes infiltriert, so könnte es zu chemischen Wechselwirkungen zwischen der Metallschmelze und dem Verstärkungsmaterial kommen, da unter Umständen relativ viel Zeit vergeht, bis der Tiegel vom Vakuumofen im Druckgefäß angeordnet ist.

Bei der Verwendung von Keramikfasern als Verstär-

kungsmaterial ist vorzugsweise ein Volumenanteil von 45% Keramikfasern vorgesehen.

Im folgenden wird anhand der zugehörigen Zeichnung ein besonders bevorzugtes Ausführungsbeispiel der Erfindung näher beschrieben. Es zeigen

Fig. 1 eine Schnittansicht eines Vakuumofens zur Verwendung bei dem Ausführungsbeispiel des erfindungsgemäßen Verfahrens,

Fig. 2 in einer Schnittansicht ein Druckgefäß zur Verwendung bei dem Ausführungsbeispiel des erfindungsgemäßen Verfahrens,

Fig. 3 in einem Diagramm das infiltrierte Volumen gegenüber dem aufgebrauchten Druck bei Verwendung von Keramikfasern als Verstärkungsmaterial mit einem Volumenanteil von 45% und

Fig. 4 in einem Diagramm, den Infiltrationsaußen-
druck gegenüber dem Volumenfüllfaktor der Vorform.

In Fig. 1 ist ein Vakuumofen 5 dargestellt, der mit einer Heizung 6 versehen ist und in dem herausnehmbar ein Tiegel 4 angeordnet ist, der einen Vorformhalter 3 aufnimmt, in dem die Vorform 1, d. h. die in der gewünschten Weise angeordneten Verstärkungsmaterialien und der Speiser 2, d. h. das Metallmaterial, beispielsweise ein Stück Aluminium angeordnet sind.

Der in Fig. 1 dargestellte Vakuumofen wird im ersten Verfahrensschritt zur Herstellung eines Metall-Matrix-Verbundwerkstoffes dazu verwandt, die Vorform 1 und den Speiser 2 im Tiegel 4 zu evakuieren und bis zum Schmelzen des Speisers 2 zu erwärmen. Dazu wird der Tiegel 4 mit dem Speiser 2, dem Vorformhalter 3 und der Vorform 1 beladen und im Vakuumofen 5 angeordnet. Vor dem Evakuieren wird mit einem Inertgas gespült. Nach dem Evakuieren erfolgt ein Aufheizen unter Vakuum, so daß der Speiser 2 aufschmilzt. Die gewünschte Schmelztemperatur unter Vakuum wird entsprechend eingestellt.

Vor dem zweiten Verfahrensschritt, nämlich der eigentlichen Infiltration der Vorform 1 durch das Metallmaterial wird der Vakuumofen 5 geöffnet und wird der Tiegel 4 mit dem schmelzflüssigen Metallmaterial herausgenommen.

Die Anordnung ist dann dem Atmosphärendruck ausgesetzt, der die Metallschmelze beaufschlagt und dafür sorgt, daß die Vorform 1 gasdicht abgeschlossen ist. Es wird dafür gesorgt, daß der Atmosphärendruck allerdings nicht ausreicht, die Metallschmelze in die Vorform 1 zu drücken und damit bereits eine Infiltration zu bewirken.

Der Mindestdruck, bei dem eine Infiltration der Metallschmelze in die Vorform 1 beginnt, hängt von der Höhe der Nichtbenetzbarkeit zwischen der Metallschmelze und dem Verstärkungsmaterial und damit von der Wahl der verwandten Materialien, der Oberflächenspannung der Metallschmelze, vom Querschnitt der Hohlräume oder Kanäle zwischen den einzelnen Teilen des Verstärkungsmaterials und damit vom Volumenanteil oder Volumenfüllfaktor der Verstärkungsmaterialien und der Homogenität ihrer Verteilung ab.

Fig. 3 zeigt den typischen Verlauf des infiltrierten Volumens gegenüber dem aufgebrauchten Druck bei Keramikfasern als Verstärkungsmaterial mit einem Volumenanteil von 45%. Aus Fig. 3 ist ersichtlich, daß eine Infiltration erst bei einem Druck von mehr als 0,1 MPa, das heißt bei einem Druck über dem Atmosphärendruck, beginnt und daß das Maß an Infiltration bis zu einem Druck von etwa 1,2 MPa zunimmt. Höhere Volumenanteile der Fasern verschieben die Druckgrenzwerte nach oben. Das heißt mit anderen Worten, daß bei

gleichem Volumenfüllfaktor Vorformen mit Fasern mit größerem Durchmesser leichter zu infiltrieren sind als Vorformen mit Fasern mit kleineren Durchmessern.

Nichtbenetzbarkeit liegt bei Al_2O_3 -Fasern, bei SIC-Fasern, bei bestimmten Kunststofffasern und bei Kohlenstofffasern vor. Von diesen Fasern haben die Al_2O_3 -Fasern mit einem Benetzungswinkel von etwa 103° die geringste Netzbarkeit mit Aluminium, der entsprechende Wert für SIC-Fasern und Kohlenstofffasern liegt bei etwa 150° .

Das Diagramm gemäß Fig. 4 zeigt den Druck, bei welchem die Infiltration beginnt gegenüber dem Volumenfüllfaktor für Al_2O_3 -Fasern mit $15\ \mu\text{m}$ Durchmesser bei 660°C und bei einer Schmelzenoberflächenspannung von $0,86\ \text{J/m}^2$.

Der in Fig. 4 dargestellte Kurvenverlauf wurde unter der Annahme berechnet, daß die Fasern genau parallel und mit konstantem Abstand zueinander angeordnet sind. Dabei hat jede Faser, welche sich nicht an der Oberfläche der Vorform befindet, genau sechs gleich weit entfernte Nachbarfasern.

Gemäß Fig. 4 würde bei einem Volumenfüllfaktor von weniger als 0,33 bereits eine Infiltration bei Atmosphärendruck auftreten. Tatsächlich tritt eine fehlerhafte Infiltration bei Atmosphärendruck bei diesen Fasern schon bei einem höheren Volumenfüllfaktor auf, da die Fasern nicht so gleichmäßig in die Vorform eingebracht werden können, wie es bei der Berechnung des Kurvenverlaufes angenommen wurde, so daß sich auch größere Kanäle ergeben, in die die Schmelze vorzeitig eindringen kann.

Der aus dem Vakuumofen 5 herausgenommene Tiegel 4, dessen Vorform 1 durch die Metallschmelze unter Atmosphärendruck luftdicht abgeschlossen ist, wird anschließend in ein Druckgefäß 8 eingebracht, das in Fig. 2 dargestellt ist. Dieses Druckgefäß 8 ist mit einer Kühlung 9 versehen.

Im Druckgefäß wird anschließend ein Druck von 1 bis etwa 15 MPa aufgebaut, der dazu führt, daß das aufgeschmolzene Metallmaterial die Vorform 1 zum infiltrierte Körper 7 in Fig. 2 infiltrierte. Der Tiegel 4 mit Vorformhalter 3 und dem darin gebildeten infiltrierte Körper 7 wird anschließend im Druckgefäß 8 abgekühlt und aus dem Druckgefäß 8 herausgenommen.

Patentansprüche

1. Verfahren zum Herstellen von Metall-Matrix Verbundwerkstoffen aus einer Metall-Matrix, in die Verstärkungsmaterialien eingebettet sind, bei dem

- die Verstärkungsmaterialien in eine Vorform gebracht werden,
- die Vorform in einem Tiegel angeordnet wird und im Bereich der Formöffnung das Metallmaterial angeordnet wird, das die Metall-Matrix bilden soll, und
- der Tiegel mit der Vorform und dem Metallmaterial evakuiert, bis zum Metallschmelzen des Metallmaterials erwärmt, mit Druck beaufschlagt und anschließend abgekühlt wird, dadurch gekennzeichnet, daß
- der Tiegel mit der Vorform und dem Metallmaterial in einem Vakuumofen zunächst evakuiert und bis zum Metallschmelzen des Metallmaterials erwärmt wird und anschließend aus dem Vakuumofen herausgenommen und unter Atmosphärendruck und mit dem ge-

schmolzenen Metallmaterial auf ein Druckge-
faß übertragen wird, in dem der Tiegel ohne
weitere Erwärmung mit Druck beaufschlagt
und dann abgekühlt wird, wobei die Materia-
lien der Verbundwerkstoffe und/oder der Vo-
lumenanteil der Verstärkungsmaterialien und/
oder die Homogenität ihrer Verteilung so ge-
wählt werden, daß der Atmosphärendruck
nicht ausreicht, das aufgeschmolzene Metall-
material in die Vorform zu drücken.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekenn-
zeichnet, daß bei Keramikfasern als Verstärkungs-
material der Volumenanteil bei wenigstens 45%
liegt.

Hierzu 4 Seite(n) Zeichnungen

15

20

25

30

35

40

45

50

55

60

65

Fig. 1

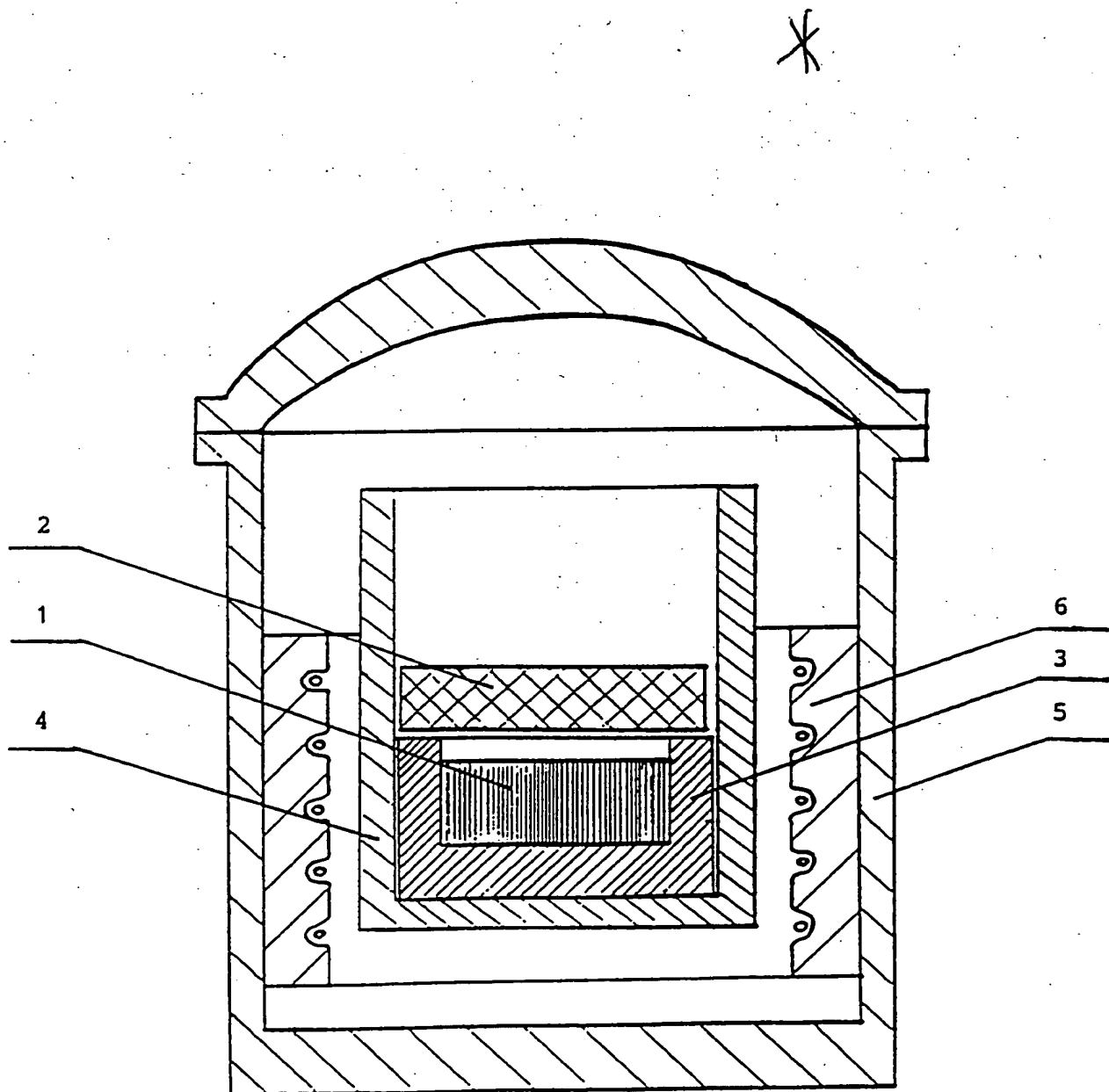


Fig. 2

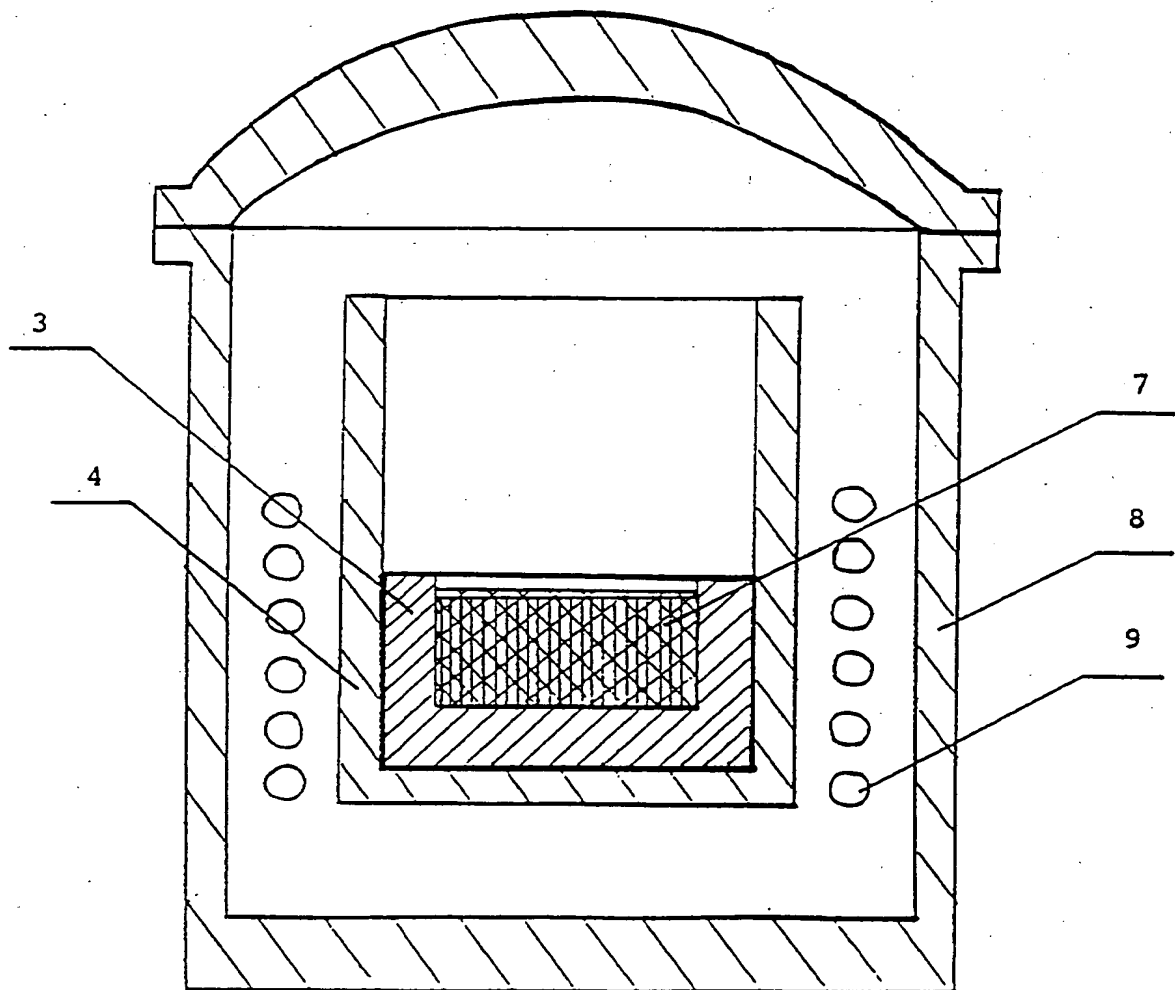


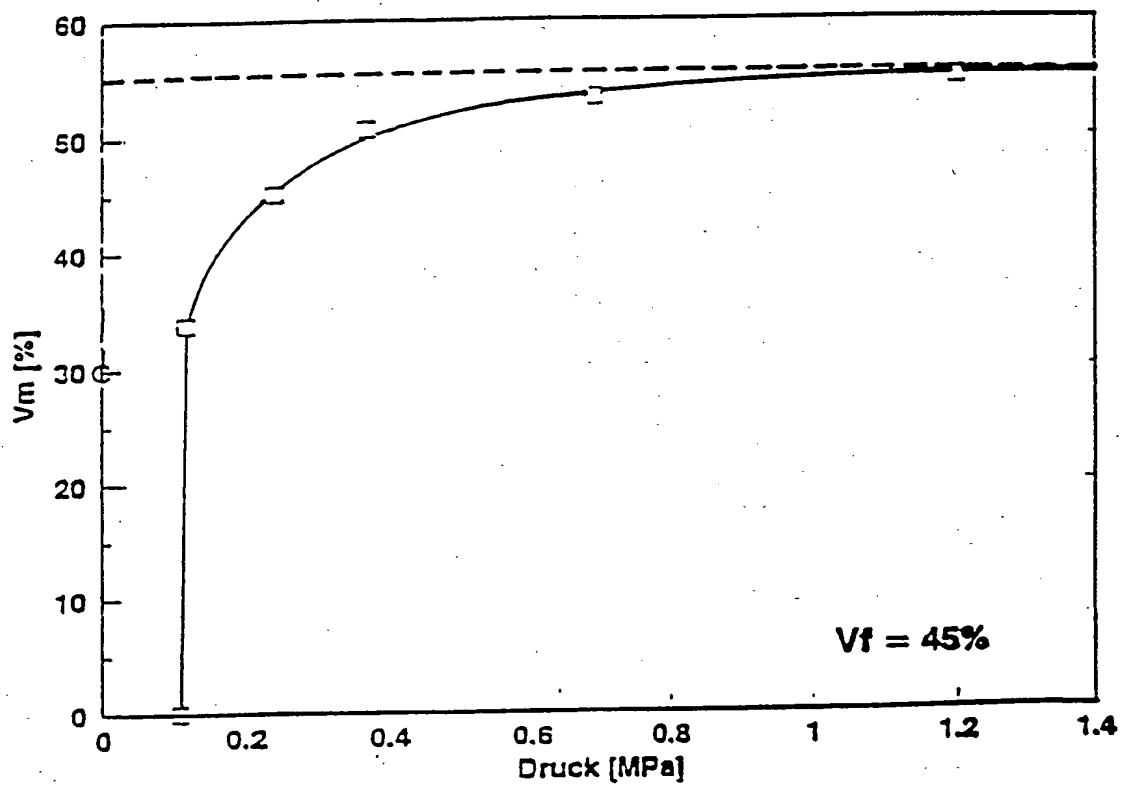
Fig. 3

FIG. 4

